

- 1 -

## Probenentnahmevorrichtung für ein Mikroreaktionssystem

Die Erfindung betrifft eine Probenentnahmevorrichtung für ein Mikroreaktionssystem mit einer Austrittsöffnung für an der Reaktion beteiligte Substanzen.

Eine ständige Entwicklung und fortschreitende Miniaturisierung von Mikroreaktoren und Mikroreaktionssystemen ermöglichen mittlerweile die Durchführung chemischer Reaktionen bei minimalem Einsatz von Reagenzien. Insbesondere bei der Durchführung einer großen Anzahl von Testreaktionen und Analysen können durch die Verwendung von miniaturisierten Mikroreaktionssystemen Aufwand und Kosten sowohl hinsichtlich der notwendigen Substanzmengen als auch der erforderlichen Reaktionsdauern eingespart werden. Darüber hinaus wird die thermische Prozessführung durch die verringerten Massenströme vereinfacht und die Sicherheit bei der Durchführung der chemischen Reaktionen gegebenenfalls erheblich erhöht.

Oftmals ist es dabei notwendig, aus einem kontinuierlich betriebenen Mikroreaktionssystem geringe Probenmengen zu entnehmen, ohne den Fluss der Reagenzien durch das Mikroreaktionssystem oder eine ablaufende chemische Reaktion zu behindern oder zu stoppen. Dazu ist üblicherweise eine Austrittsöffnung vorgesehen, die an geeigneter Stelle innerhalb des Mikroreaktionssystems angeordnet ist und über ein Ventil steuerbar ist. Je nach

- 2 -

Ausgestaltung der Austrittsöffnung und des diese Austrittsöffnung steuernden Ventils entstehen dabei mit dem Mikroreaktionssystem in Verbindung stehende Hohlräume, in welchem die im Mikroreaktionssystem ablaufende chemische Reaktion nicht oder nur unter anderen, meistens unkontrollierbaren Bedingungen abläuft. Das Vorhandensein solcher als Totvolumina bezeichneter Hohlräume kann die chemische Reaktion im Mikroreaktionssystem in unerwünschter Weise beeinflussen und zudem die Aussagekraft einer Auswertung vermindern, bei welcher die entnommene Probenmenge ausschließlich oder zum Teil aus einem im Bereich der Austrittsöffnung bestehenden Totvolumen entnommen wurde.

Zusätzlich erfordert die Verwendung von Ventilen aufwendige Spülvorgänge, um nach Beendigung einer durchgeführten Mikroreaktion und vor Beginn einer nachfolgenden Mikroreaktion das Mikroreaktionssystem einschließlich des damit in Verbindung stehenden Ventils sorgfältig zu reinigen, um eine Kontamination der nachfolgenden Mikroreaktion zu vermeiden. Ebenfalls lässt sich ein dichter Verschluss einer Austrittsöffnung mittels eines Ventils nur mit erheblichem konstruktivem Aufwand sicherstellen.

Aufgabe der Erfindung ist es demzufolge, eine Probenentnahmevorrichtung so auszugestalten, dass aus einem Mikroreaktionssystem zuverlässig Proben entnommen werden können, wobei Totvolumina im Bereich der Austrittsöffnung zur Probenentnahme möglichst vermieden und dadurch eine Beeinträchtigung der im Mikroreaktionssystem ablaufenden chemischen Reaktion vermindert werden soll.

- 3 -

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, dass eine Öffnung eine Absaugleitung seitlich neben der Austrittsöffnung angeordnet ist, wobei in der Absaugleitung zum Absaugen der aus der Austrittsöffnung austretenden Substanzen ein Unterdruck erzeugbar ist. Die Austrittsöffnung wird dabei entweder als Ausgang des Mikroreaktionssystems zum vollständigen Austreten der an der chemischen Reaktion beteiligten Substanzen verwendet oder an geeigneter Stelle innerhalb des Mikroreaktionssystems ausreichend klein gestaltet, so dass eine an dieser Stelle kontinuierlich austretende Substanzmenge die im Mikroreaktionssystem ablaufende Reaktion nicht wesentlich beeinträchtigt. Dadurch besteht keine Notwendigkeit für die Anordnung eines Ventils zwischen der Austrittsöffnung und dem damit verbundenen Mikroreaktionssystem, so dass praxistaugliche konstruktive Ausgestaltungen denkbar sind, die mit einem nur minimalen oder sogar gänzlich ohne ein Totvolumen im Bereich der Austrittsöffnung auskommen.

Ob die aus der Austrittsöffnung zu einem bestimmten Zeitpunkt austretende Substanzmenge nicht weiter verwendet oder aber als entnommene Probe einer weiteren Auswertung zugeführt wird, lässt sich mittels der unmittelbar neben der Austrittsöffnung angeordneten Absaugleitung steuern. Herrscht in der Absaugleitung ein ausreichender Unterdruck, so wird die aus der Austrittsöffnung zu einem bestimmten Zeitpunkt austretende Substanzmenge in die Absaugleitung hinein gesaugt. Ohne Unterdruck in der Absaugleitung fällt die aus der Austrittsöffnung austretende Substanzmenge unbeeinflusst neben der Absaugleitung vorbei und kann

- 4 -

unterhalb der Absaugleitung aufgefangen und gesammelt werden. Abhängig von einer bevorzugten konstruktiven Gestaltung oder dem Mengenverhältnis von nicht weiter verwendeter Substanz zu der als entnommene Probe zur weiteren Auswertung herangezogene Substanz kann entweder die in die Absaugleitung abgesaugte Substanzmenge oder die unterhalb der Absaugleitung neben diese herabfallende Substanzmenge zur weiteren Verwendung herangezogen werden.

Vorzugsweise ist dabei vorgesehen, dass um die Austrittsöffnung herum ein Gehäuse angeordnet ist mit einer Auslassöffnung für aus der Austrittsöffnung austretende Substanzen und mit einer Durchführungsöffnung für die Absaugleitung. Das Gehäuse schützt einerseits den Bereich um die Austrittsöffnung vor ungewünschten unkontrollierbaren Umgebungseinflüssen und erlaubt andererseits mit einfachen Mitteln die präzise und reproduzierbare Anordnung der Absaugleitung im Verhältnis zur Austrittsöffnung. Je näher die Öffnung der Absaugleitung relativ zur Austrittsöffnung angeordnet werden kann, ohne dass austretende Substanzen in direkten Kontakt mit der Absaugleitung kommen, umso geringer ist der mindestens notwendige Unterdruck innerhalb der Absaugleitung, um ein vollständiges Absaugen der aus der Austrittsöffnung austretenden Substanzmenge zu gewährleisten.

Einer Ausgestaltung des Erfindungsgedankens zufolge ist vorgesehen, dass die Anordnung der Öffnung der Absaugleitung relativ zur Austrittsöffnung veränderbar ist. Auf diese Weise kann bei vorgegebenem Unterdruck in der Absaugleitung die dadurch verursachte Saugwirkung im

- 5 -

Bereich der Austrittsöffnung verändert werden, um möglicherweise unterschiedlichen Eigenschaften der verwendeten Substanzen und Reaktionsprodukte, beispielsweise verschiedenen Viskositäten oder Flüchtigkeiten Rechnung zu tragen.

Gemäß einer Ausgestaltung des Erfindungsgedankens ist vorgesehen, dass die Absaugleitung in einen Sammelbehälter mündet, der über ein Ventil mit einer Vakuumleitung verbunden ist. So kann beispielsweise bei kontinuierlichem Unterdruck das Mikroreaktionssystem über die Austrittsöffnung vollständig entleert werden, wobei die austretenden Substanzmengen über die Absaugleitungen in den Sammelbehälter gespült werden. Nach einer vollständigen Entleerung des Mikroreaktionssystems, gegebenenfalls mit einer nachfolgenden Spülung mit Reinigungsmitteln, befinden sich alle an der Reaktion beteiligten Substanzen in dem Sammelbehälter, beispielsweise einer handelsüblichen Waschflasche. Dieser Sammelbehälter kann einfach von der Probenentnahmevorrichtung getrennt und entnommen werden, um eine Entsorgung oder weitere Verwendung der Reaktionsprodukte zu ermöglichen.

Über das in der Vakuumleitung zum Sammelbehälter angeordnete Ventil lässt sich der Unterdruck in dem Sammelbehälter und der in den Sammelbehälter mündenden Absaugleitung in einfacher Weise steuern. Die Vakuumleitung führt entweder direkt zu einer Vakuumpumpe oder ist Teil eines Vakuumsystems mit einer Vielzahl von Anschlüssen, wie es insbesondere in größeren chemischen Labors installiert ist. Der Sammelbehälter und die Absaugleitung weisen dabei ein ausreichend kleines Innenraumvolumen auf, um möglichst

- 6 -

verzögerungsfrei in Abhängigkeit von der Ventilsteuerung einen ausreichenden Unterdruck zum Absaugen aufbauen oder ausgleichen zu können.

In dieser vorteilhaften Betriebsart des kontinuierlichen Absaugens der aus der Austrittsöffnung austretenden Substanzmengen kann eine Probe zu einem beliebigen Zeitpunkt entnommen werden, indem durch kurzzeitiges Schließen des Ventils der Absaugvorgang unterbrochen wird und die aus der Austrittsöffnung austretende Substanzmenge an der Absaugleitung vorbei in einen unterhalb der Austrittsöffnung angeordneten Probenbehälter fällt. Die zu entnehmende Probenmenge lässt sich über die Zeitdauer vorgeben, innerhalb der kein Absaugen der austretenden Substanzen stattfindet.

Vorzugsweise ist vorgesehen, dass die Austrittsöffnung in Form einer Kapillare gestaltet ist. Eine Kapillare ermöglicht einerseits ein genaues Dosieren auch von geringen Substanzmengen während des Austretens aus dem Mikroreaktionssystem und verhindert andererseits weitgehend eine Beeinflussung der in dem Mikroreaktionssystem ablaufenden Reaktionen durch die wechselnden Druckverhältnisse in unmittelbarer Umgebung der Austrittsöffnung. Der Innendurchmesser der Kapillare wird dabei zweckmäßigerweise ausreichend klein gewählt, um ein vollständiges Absaugen der austretenden Substanzmengen zu gewährleisten und andererseits ausreichend groß gewählt werden, um ein kontinuierliches Austreten der Substanzen nicht durch einen stark ansteigenden Differenzdruck bei der Kapillare zu gefährden. Mit einer geeigneten Kapillare kann insbesondere sichergestellt werden, dass die Substanz in

- 7 -

einem feinen, freien Strahl aus der Austrittsöffnung austritt.

Vorteilhafterweise ist vorgesehen, dass die Probenentnahmevorrichtung im Bereich der Austrittsöffnung beheizbar ist. Es hat sich gezeigt, dass es bei Verwendung von leicht flüchtigen Lösungsmitteln wie beispielsweise Dichlormethan oder Äther auf Grund der Verdampfungsenthalpie des Lösungsmittels zur Eisbildung an der Austrittsöffnung kommen kann. Diese ungewünschte Beeinträchtigung während des Betriebs kann durch eine Erwärmung der Probenentnahmevorrichtung im Bereich der Austrittsöffnung ohne weiteres vermieden werden.

Einer Ausgestaltung des Erfindungsgedankens zufolge ist vorgesehen, dass zur Beheizung eine elektrische Heizvorrichtung oder eine Wärmekopplung vorgesehen ist. Eine elektrische Heizvorrichtung in Form eines steuerbaren Heizdrahtes lässt sich mit einfachen Mitteln in vorteilhafter Weise an die Ausgestaltung der Austrittsöffnung beispielsweise in Form einer Kapillare anpassen.

Gemäß einer Ausgestaltung des Erfindungsgedankens ist vorgesehen, dass im Bereich der Austrittsöffnung eine die Luftfeuchtigkeit verdrängende Schutzgasatmosphäre herstellbar und erhaltbar ist. Die Schutzgasatmosphäre kann anstelle oder zusätzlich zu einer Heizvorrichtung verwendet werden, um eine unerwünschte Eisbildung an einer sich abkühlenden Austrittsöffnung zu verhindern. Darüber hinaus ist es mittels einer Schutzgasatmosphäre möglich, eine

- 8 -

Verunreinigung der aus der Austrittsöffnung austretenden Substanzen weitgehend zu verhindern.

Vorteilhafterweise ist vorgesehen, dass eine Öffnung einer Druckluftleitung seitlich neben der Austrittsöffnung der Öffnung der Abluftleitung gegenüber liegend angeordnet ist, wobei in der Druckluftleitung ein Überdruck eines Gases erzeugbar ist, um mit dem durch die Öffnung der Druckluftleitung ausströmenden Gas die aus der Austrittsöffnung austretenden Substanzen in Richtung der Öffnung der Absaugleitung zu blasen. Auf diese Weise können die austretenden Substanzen unterstützend zum Absaugvorgang durch das mit Überdruck austretende Gas in Richtung der Öffnung der Absaugleitung geblasen werden, wodurch sich eine vollständige und sichere Absaugung aller austretenden Substanzen auch bei ungünstigen Bedingungen oder mit vergleichsweise geringeren Druckdifferenzen zum Umgebungsdruck in der Abluftleitung, beziehungsweise Druckluftleitung gewährleisten lassen.

Gemäß einer Ausgestaltung des Erfindungsgedankens ist vorgesehen, dass als Gas ein chemisch weitgehend inaktives Schutzgas verwendet wird. Dadurch werden unerwünschte Reaktionen des ausströmenden Gases mit den Substanzen vermieden, die gemeinsam in die Absaugleitung abgesaugt werden. Auch lässt sich bei Verwendung eines Schutzgases eine im Bereich der Austrittsöffnung der Substanzen hergestellte Schutzgasatmosphäre ungestört aufrechterhalten.

Bei entsprechender Ausgestaltung des Absaugsystems kann ohne Vakuum, nur durch den Druck der Luft oder des



- 9 -

Inertgases, die Substanz von der Kapillare in das Auffangrohr geblasen werden.

Vorzugsweise ist vorgesehen, dass die Probenentnahmevorrichtung weitgehend oder vollständig aus chemisch beständigen Materialien herstellbar ist.

Nachfolgend wird ein Ausführungsbeispiel der Erfindung näher beschrieben, das in der Zeichnung dargestellt ist.

Die in der Figur dargestellte Probenentnahmevorrichtung 1 ist über einen Schlauch 2 mit einem Mikroreaktionssystem 3 verbunden. Nach erfolgter Reaktion wird das gesamte Mikroreaktionssystem 3 über die Probenentnahmevorrichtung 1 vollständig entleert. Die Austrittsöffnung 4 ist in Form einer Kapillare gestaltet. Der Schlauch 2 ist über ein Anschlussstück 5 lösbar mit der Austrittsöffnung 4 in Form einer Kapillare verbunden. Auf diese Weise können mehrere Mikroreaktionssysteme 3 mit verschiedenen Probenentnahmevorrichtungen 1 in beliebiger Kombination verwendet werden, so dass beispielsweise in Abhängigkeit der verwendeten Substanzen zugeordnete Probenentnahmevorrichtungen 1 mit einem für bestimmte Anwendungen geeignete Mikroreaktionssystem 3 kombiniert werden kann oder ein zu reinigendes Mikroreaktionssystem 3 oder eine zu reinigende Probenentnahmevorrichtung 1 einfach ausgetauscht werden können, um einen möglichst kontinuierlichen Betrieb zu gewährleisten.

Die als Kapillare gestaltete Austrittsöffnung 4 ist im Innenraum eines hülsenförmigen Gehäuses 6 beweglich angeordnet. Sowohl das Anschlussstück 5 des Schlauchs 2 als

- 10 -

auch die Austrittsöffnung 4 in Kapillarform sind in einem Gehäusedeckel 7 befestigt, der über ein Schraubgewinde mit dem Gehäuse 6 in Eingriff steht und so eine Längsverschiebung des offenen Endes der Kapillare relativ zum Gehäuseboden des Gehäuses 6 ermöglicht.

Das Gehäuse 6 weist benachbart zur kapillarförmigen Austrittsöffnung 4 eine Durchführungsöffnung 8 auf, durch die hindurch eine Absaugleitung 9 in das Innere des Gehäuses 6 ragt. Die Absaugleitung 9 mündet in eine Waschflasche 10, die über ein Magnetventil 11 mit einer Vakuumleitung 12 verbunden ist.

Bei geöffnetem Magnetventil 11 entsteht in der Waschflasche 10 und der Absaugleitung 9 ein Unterdruck, der bewirkt, dass aus der Austrittsöffnung 4 austretende Substanzen 13 in die Absaugleitung 9 gesaugt und in der Waschflasche 10 gesammelt werden.

Zur Entnahme einer Probe der Reaktionsprodukte wird das Magnetventil 11 geschlossen und dadurch der Unterdruck in der Absaugleitung 9 für eine definierte Zeit aufgehoben, wodurch die aus der Austrittsöffnung 4 austretende Substanzmenge 13 nicht in die Absaugleitung 9 gesaugt wird, sondern durch eine Auslassöffnung 14 im Boden des Gehäuses 6 hindurch austritt und in einem nicht dargestellten Probenbehälter aufgefangen werden kann.

Über die Dauer des eingeschalteten oder ausgeschalteten Vakuums lässt sich die abgesaugte bzw. durch die Auslassöffnung 14 austretende Substanzmenge 13 präzise dosieren, so dass eine Verwendung der

- 11 -

Probenentnahmevorrichtung auch als Dosiersystem denkbar ist.

Seitlich neben der kapillarförmigen Austrittsöffnung 4 ist gegenüber der Öffnung der Absaugleitung 9 eine Öffnung einer Druckluftleitung 15 angeordnet. Wird das in der Druckluftleitung befindliche Gas mit Überdruck beaufschlagt, so strömt das Gas durch die Öffnung der Druckluftleitung 15 aus und bläst aus der Austrittsöffnung 4 austretende Substanzen in Richtung der Öffnung der Absaugleitung 9. Durch eine gleichzeitig zum Vakuum erzeugte Druckbeaufschlagung in der Druckluftleitung 15 wird das Absaugen austretender Substanzen in die Absaugleitung 9 unterstützt. Als druckbeaufschlagtes Gas wird zweckmäßigerweise Luft oder ein Inertgas zum gerichteten Wegblasen der austretenden Substanzen verwendet.

Es ist auch möglich, bei geeigneter Druckbeaufschlagung der aus der Austrittsöffnung 4 austretenden Substanzen die beschriebene Vorrichtung ohne wesentliche Änderungen auch als Druckkopf zu verwenden.

## P a t e n t a n s p r ü c h e

1. Probeentnahmevorrichtung für ein Mikroreaktionssystem mit einer Austrittsöffnung für an der Reaktion beteiligte Substanzen, dadurch gekennzeichnet, dass eine Öffnung einer Absaugleitung (9) seitlich neben der Austrittsöffnung (4) angeordnet ist, wobei in der Absaugleitung (9) zum Absaugen der aus der Austrittsöffnung (4) austretenden Substanzen (13) ein Unterdruck erzeugbar ist.

2. Probenentnahmevorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass um die Austrittsöffnung (4) herum ein Gehäuse (6) angeordnet ist mit einer Auslassöffnung (14) für aus der Austrittsöffnung (4) austretende Substanzen (13) und mit einer Durchführungsöffnung (8) für die Absaugleitung (9).

3. Probenentnahmevorrichtung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Anordnung der Öffnung der Absaugleitung (9) relativ zur Austrittsöffnung (4) veränderbar ist.

4. Probenentnahmevorrichtung nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Absaugleitung

- 13 -

(9) in einen Sammelbehälter (10) mündet, der über ein Ventil (11) mit einer Vakuumleitung (12) verbunden ist.

5. Probenentnahmevorrichtung nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Austrittsöffnung (4) in Form einer Kapillare gestaltet ist.

6. Probenentnahmevorrichtung nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Probenentnahmevorrichtung (1) im Bereich der Austrittsöffnung (4) beheizbar ist.

7. Probenentnahmevorrichtung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass zur Beheizung eine elektrische Heizvorrichtung oder eine Wärmekopplung vorgesehen ist.

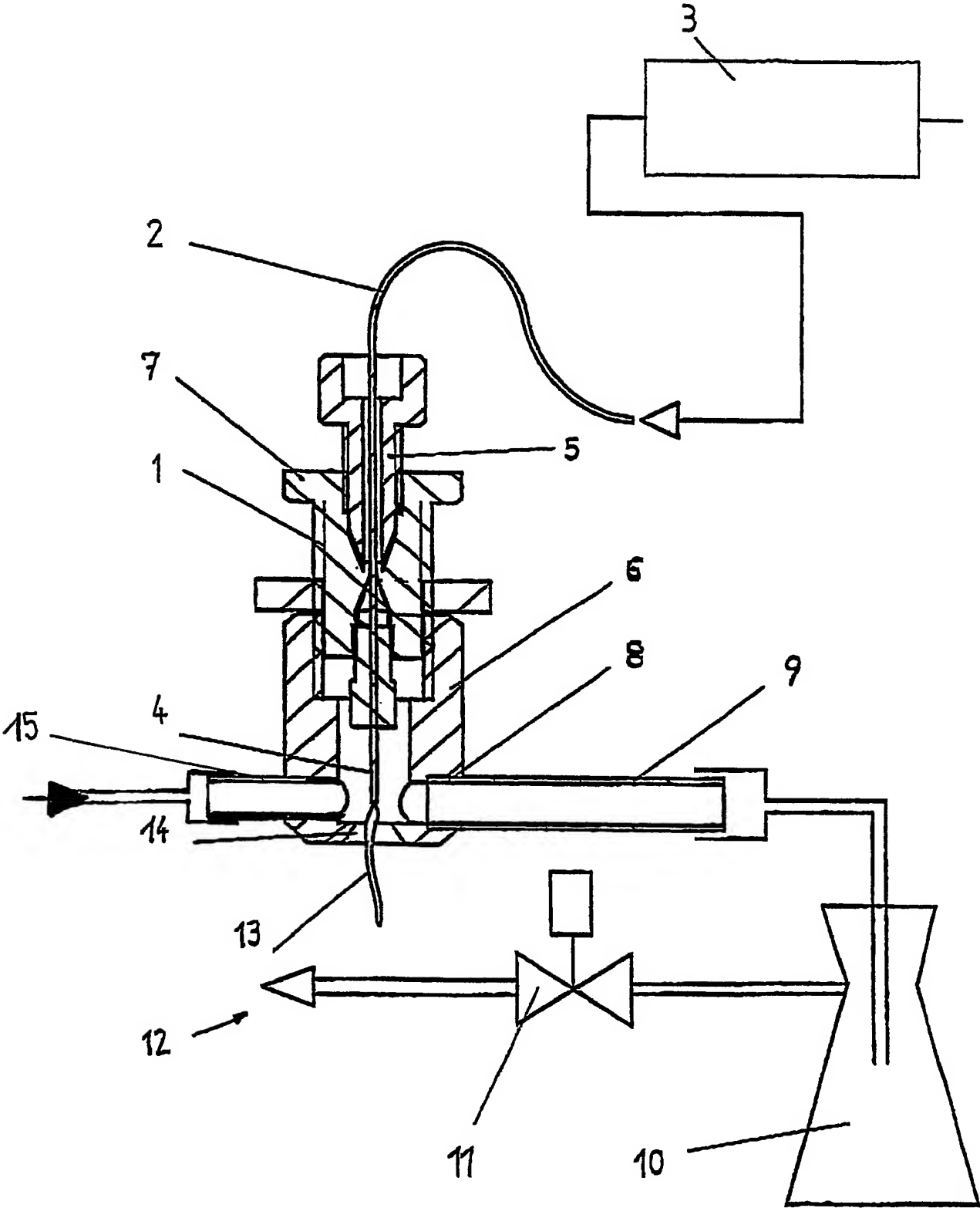
8. Probenentnahmevorrichtung nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass im Bereich der Austrittsöffnung (4) eine die Luftfeuchtigkeit verdrängende Schutzgasatmosphäre herstellbar und erhaltbar ist.

9. Probenentnahmevorrichtung nach einem der voranstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass eine Öffnung einer Druckluftleitung (15) seitlich neben der Austrittsöffnung (4) der Öffnung der Abluftleitung (9) gegenüber liegend angeordnet ist, wobei in der Druckluftleitung (15) ein Überdruck eines Gases erzeugbar ist, um mit dem durch die Öffnung der Druckluftleitung (15) ausströmenden Gas die aus der Austrittsöffnung (4) austretenden Substanzen (13) in Richtung der Öffnung der Absaugleitung (9) zu blasen.

- 14 -

10. Probenentnahmevorrichtung nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass als Gas ein chemisch weitgehend inaktives Schutzgas verwendet wird.

11. Probenentnahmevorrichtung nach einem der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Probenentnahmevorrichtung (1) weitgehend oder vollständig aus chemisch beständigen Materialien herstellbar ist.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP2004/006094

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 G01N1/20 G01N1/10 B01L3/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 G01N B01L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 3 974 697 A (SPETH SEBASTIAN) 17 August 1976 (1976-08-17) abstract; figure 1 column 3, line 8 -column 4, line 3 ----	1-11
A	US 6 074 880 A (VANDEN BOSCH DONN H ET AL) 13 June 2000 (2000-06-13) figures 2-4 column 7, line 5 -column 8, line 18 ----	1-11
A	DE 21 07 663 A (POLYSIUS AG) 28 September 1972 (1972-09-28) figure 1 page 4 -page 5 ----- -/--	1-11



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \* & \* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

18 August 2004

Date of mailing of the international search report

30/08/2004

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Runser, C



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP2004/006094

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 6 401 769 B1 (SHAW JOHN EDWARD ANDREW ET AL) 11 June 2002 (2002-06-11) abstract; figures 1-5 column 2, line 42 -column 3, line 46 -----	1-11
A	US 6 085 602 A (NOE WOLFGANG ET AL) 11 July 2000 (2000-07-11) abstract; figures 1,2 column 2, line 24 -column 4, line 22 -----	1-11

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP2004/006094

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3974697	A	17-08-1976	DE 2354091 A1	07-05-1975
			FR 2249320 A1	23-05-1975
			GB 1490737 A	02-11-1977
			IT 1021938 B	20-02-1978
			NL 7413549 A	02-05-1975
US 6074880	A	13-06-2000	AU 751209 B2	08-08-2002
			AU 5791099 A	21-03-2000
			CA 2308309 A1	09-03-2000
			EP 1027123 A1	16-08-2000
			JP 2002523074 T	30-07-2002
			WO 0012191 A1	09-03-2000
			US 6737022 B1	18-05-2004
DE 2107663	A	28-09-1972	DE 2107663 A1	28-09-1972
US 6401769	B1	11-06-2002	AT 245488 T	15-08-2003
			AU 746828 B2	02-05-2002
			AU 2174499 A	02-08-1999
			CA 2318291 A1	22-07-1999
			DE 69909753 D1	28-08-2003
			DE 69909753 T2	22-04-2004
			DK 1054734 T3	10-11-2003
			EP 1054734 A1	29-11-2000
			JP 2002509023 T	26-03-2002
US 6085602	A	11-07-2000	WO 9936176 A1	22-07-1999
			DE 4432599 A1	14-03-1996
			AT 188734 T	15-01-2000
			AU 697166 B2	01-10-1998
			AU 3606595 A	29-03-1996
			BR 9508950 A	06-01-1998
			CA 2194461 A1	21-03-1996
			CN 1157634 A	20-08-1997
			DE 9421778 U1	14-11-1996
			DE 59507621 D1	17-02-2000
			WO 9608556 A1	21-03-1996
			EP 0781325 A1	02-07-1997
			IL 115280 A	12-03-1999
			JP 10505503 T	02-06-1998
			NZ 293590 A	24-09-1998
			PL 319310 A1	04-08-1997
			ZA 9507627 A	12-03-1997

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/006094

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 G01N1/20 G01N1/10 B01L3/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 G01N B01L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 3 974 697 A (SPETH SEBASTIAN) 17. August 1976 (1976-08-17) Zusammenfassung; Abbildung 1 Spalte 3, Zeile 8 -Spalte 4, Zeile 3 ---	1-11
A	US 6 074 880 A (VANDEN BOSCH DONN H ET AL) 13. Juni 2000 (2000-06-13) Abbildungen 2-4 Spalte 7, Zeile 5 -Spalte 8, Zeile 18 ---	1-11
A	DE 21 07 663 A (POLYSIUS AG) 28. September 1972 (1972-09-28) Abbildung 1 Seite 4 -Seite 5 --- -/-	1-11



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

18. August 2004

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

30/08/2004

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Runser, C

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/006094

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 6 401 769 B1 (SHAW JOHN EDWARD ANDREW ET AL) 11. Juni 2002 (2002-06-11) Zusammenfassung; Abbildungen 1-5 Spalte 2, Zeile 42 -Spalte 3, Zeile 46 -----	1-11
A	US 6 085 602 A (NOE WOLFGANG ET AL) 11. Juli 2000 (2000-07-11) Zusammenfassung; Abbildungen 1,2 Spalte 2, Zeile 24 -Spalte 4, Zeile 22 -----	1-11

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/006094

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 3974697	A	17-08-1976	DE	2354091 A1	07-05-1975
			FR	2249320 A1	23-05-1975
			GB	1490737 A	02-11-1977
			IT	1021938 B	20-02-1978
			NL	7413549 A	02-05-1975
US 6074880	A	13-06-2000	AU	751209 B2	08-08-2002
			AU	5791099 A	21-03-2000
			CA	2308309 A1	09-03-2000
			EP	1027123 A1	16-08-2000
			JP	2002523074 T	30-07-2002
			WO	0012191 A1	09-03-2000
			US	6737022 B1	18-05-2004
DE 2107663	A	28-09-1972	DE	2107663 A1	28-09-1972
US 6401769	B1	11-06-2002	AT	245488 T	15-08-2003
			AU	746828 B2	02-05-2002
			AU	2174499 A	02-08-1999
			CA	2318291 A1	22-07-1999
			DE	69909753 D1	28-08-2003
			DE	69909753 T2	22-04-2004
			DK	1054734 T3	10-11-2003
			EP	1054734 A1	29-11-2000
			JP	2002509023 T	26-03-2002
			WO	9936176 A1	22-07-1999
US 6085602	A	11-07-2000	DE	4432599 A1	14-03-1996
			AT	188734 T	15-01-2000
			AU	697166 B2	01-10-1998
			AU	3606595 A	29-03-1996
			BR	9508950 A	06-01-1998
			CA	2194461 A1	21-03-1996
			CN	1157634 A	20-08-1997
			DE	9421778 U1	14-11-1996
			DE	59507621 D1	17-02-2000
			WO	9608556 A1	21-03-1996
			EP	0781325 A1	02-07-1997
			IL	115280 A	12-03-1999
			JP	10505503 T	02-06-1998
			NZ	293590 A	24-09-1998
			PL	319310 A1	04-08-1997
			ZA	9507627 A	12-03-1997